

(19)



JAPANESE PATENT OFFICE

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number: **2003217605 A**

(43) Date of publication of application: **31.07.03**

(51) Int. Cl

**H01M 8/02**

(21) Application number: **2002017939**

(22) Date of filing: **28.01.02**

(71) Applicant: **SUMITOMO BAKELITE CO LTD**

(72) Inventor: **FUJII SHUNSUKE  
SUZUKI TAKAYUKI**

**(54) MOLDING MATERIAL FOR FUEL CELL  
SEPARATOR, AND FUEL CELL SEPARATOR  
MOLDED OF THE SAME**

(57) Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide molding material for a fuel cell separator which is excellent in moldability, electric characteristics, and mechanical characteristics, and a fuel cell separator molded of the same.

SOLUTION: This molding material contains thermosetting resin, carbon material having conductivity, and diene rubber as the essential components. The diene rubber includes reactive function groups to the thermosetting resin. Preferably, it includes 6-22 pts.wt. thermosetting resin, 74-90 pts.wt. conductive carbon material, and 0.3-3 pts.wt. diene rubber to 100 pts.wt. of the total molding material.

COPYRIGHT: (C)2003,JPO

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号  
特開2003-217605  
(P2003-217605A)

(43) 公開日 平成15年7月31日 (2003.7.31)

(51) Int.Cl.<sup>7</sup>  
H 0 1 M 8/02

識別記号

F I  
H 0 1 M 8/02

テーマコード(参考)  
B 5 H 0 2 6

審査請求 未請求 請求項の数 7 O L (全 7 頁)

(21) 出願番号 特願2002-17939 (P2002-17939)

(22) 出願日 平成14年1月28日 (2002.1.28)

(71) 出願人 000002141

住友ベークライト株式会社  
東京都品川区東品川2丁目5番8号

(72) 発明者 藤井 俊介

東京都品川区東品川2丁目5番8号 住友  
ベークライト株式会社内

(72) 発明者 鈴木 孝之

東京都品川区東品川2丁目5番8号 住友  
ベークライト株式会社内

Fターム(参考) 5H026 EE06 EE18 HH05

(54) 【発明の名称】 燃料電池セパレーター用成形材料及びこれを成形してなる燃料電池セパレーター

(57) 【要約】

【課題】 成形性、電気的特性、機械的特性に優れた燃料電池用セパレーター用成形材料及びこれを成形してなる燃料電池セパレーターを提供する

【解決手段】 熱硬化性樹脂、導電性を有する炭素系基材、及びジエン系ゴムを必須成分として含有し、前記ジエン系ゴムが前記熱硬化性樹脂との反応性官能基を有することを特徴とする燃料電池セパレーター用成形材料であり、好ましくは成形材料全体100重量部に対して、熱硬化性樹脂6～22重量部、導電性を有する炭素系基材74～90重量部、およびジエン系ゴム0.3～3重量部を含有する。

## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 熱硬化性樹脂、導電性を有する炭素系基材、及びジエン系ゴムを必須成分として含有し、前記ジエン系ゴムが前記熱硬化性樹脂との反応性官能基を有することを特徴とする燃料電池セパレーター用成形材料。

【請求項 2】 熱硬化性樹脂が、レゾール型フェノール樹脂である請求項 1 記載の燃料電池セパレーター用成形材料。

【請求項 3】 熱硬化性樹脂が、エポキシ樹脂である請求項 1 記載の燃料電池セパレーター用成形材料。

【請求項 4】 導電性を有する炭素系基材が、黒鉛である請求項 1 ないし 3 のいずれかに記載の燃料電池セパレーター用成形材料。

【請求項 5】 ジエン系ゴムが、ポリブタジエンである請求項 1 ないし 4 のいずれかに記載の燃料電池セパレーター用成形材料。

【請求項 6】 成形材料全体 100 重量部に対して、熱硬化性樹脂 6～22 重量部、導電性を有する炭素系基材 74～90 重量部、およびジエン系ゴム 0.3～3 重量部を含有する請求項 1 ないし 5 のいずれかに記載の燃料電池セパレーター用成形材料。

【請求項 7】 請求項 1 ないし 6 のいずれかに記載の燃料電池セパレーター用成形材料を成形してなる燃料電池セパレーター。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、燃料電池セパレーター用成形材料及びこれを成形してなる燃料電池セパレーターに関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】 従来、燃料電池セパレーターは熱硬化性樹脂と炭素質粉末の混合物を成形した後、成形体を焼成し導電性を高める黒鉛化工程や、切削や研磨などにより必要形状を付与する機械加工工程を含む方法（例えば、特開 2000-169230 号公報）、或いは金属板に溝などの形状加工をした上で樹脂コートを行うなどの金属樹脂コンポジットを素材とする方法（例えば、特開平 11-345618 号公報、新エネルギー産業技術総合開発機構 平成 12 年度固体高分子型燃料電池研究開発成果報告会要旨集 P 70）などにより、作成が試みられて来た。しかし、黒鉛化工程や機械加工工程を必要とする手法では、大量生産への展開が困難な為にコストが下げられず、一方、溝加工した金属板樹脂コンポジットを素材とする手法では、使用される環境において金属と樹脂との界面層で発生する層剥離及び金属板の腐食問題が解決せず、品質と価格で適切な燃料電池セパレーターを供給する目途が立っていない。このため、さらに種々の試みがなされており、黒鉛やカーボンブラック等の炭素系基材に、フェノール樹脂やエポキシ樹脂、ポリエステル樹脂などの熱硬化性樹脂をバインダー成分として配合

した成形材料の成形品での試みがなされている。

【0003】 熱硬化性樹脂と炭素系基材からなる成形材料の場合、燃料電池セパレーターとして高導電性を得る為に、成形材料中の炭素系基材の配合率を高くすると、成形性を向上させる為に樹脂配合率を高くすることが相反する要因である。しかし、燃料電池セパレーターとして用いる場合に要求される導電性能を得るためには、通常と比較し極めて高比率の炭素系基材を配合した成形材料を用いなければならず、このような配合により製造された成形材料は高圧力の圧縮成形法を用いても、複雑で狭隘な燃料電池セパレーターの流路構造を精度良く成形することは容易ではなかった。更に配合によっては成形品の機械的強度なども十分なものではなく、例えば燃料電池内部に組み込むためにセパレーターを積層し締め付ける際には、靱性不足により割れが発生するなどの問題があった。

【0004】 このため、配合する熱硬化性樹脂として低分子量のものをを用いたり、カルナバワックス、ポリエチレンワックスのような可塑剤を配合して成形時の流動性を付与したりする試みもなされたが、前者の方法では成形品の熱時機械的強度が低下し、後者の方法では配合した可塑剤が成形材料の保管中に遊離しやすく、本来の目的を達しえないことがあるといった問題点があった。また、使用する可塑剤が樹脂との反応性官能基を有していない場合には、機械的強度の低下を招くとともに、燃料電池の実働雰囲気下では成形体から溶出しやすく、セパレーターの耐酸性や電解質膜の汚染など長期信頼性を損なうこともあった。

## 【0005】

【発明が解決しようとする課題】 本発明は、成形性、電気的特性、機械的特性に優れた燃料電池用セパレーター用成形材料及びこれを成形してなる燃料電池セパレーターを提供するものである。

## 【0006】

【課題を解決するための手段】 このような目的は、下記（1）～（7）記載の本発明により達成される。

（1） 熱硬化性樹脂、導電性を有する炭素系基材、及びジエン系ゴムを必須成分として含有し、前記ジエン系ゴムが前記熱硬化性樹脂との反応性官能基を有することを特徴とする燃料電池セパレーター用成形材料。

（2） 熱硬化性樹脂が、レゾール型フェノール樹脂である上記（1）に記載の燃料電池セパレーター用成形材料。

（3） 熱硬化性樹脂が、エポキシ樹脂である上記（1）に記載の燃料電池セパレーター用成形材料。

（4） 導電性を有する炭素系基材が、黒鉛である上記（1）ないし（3）のいずれかに記載の燃料電池セパレーター用成形材料。

（5） ジエン系ゴムが、ポリブタジエンである上記（1）ないし（4）のいずれかに記載の燃料電池セパレ

ター用成形材料。

(6) 成形材料全体100重量部に対して、熱硬化性樹脂6～22重量部、導電性を有する炭素系基材74～90重量部、およびジエン系ゴム0.3～3重量部を含有する上記(1)ないし(5)のいずれかに記載の燃料電池セパレーター用成形材料。

(7) 上記(1)ないし(6)のいずれかに記載の燃料電池セパレーター用成形材料を成形してなる燃料電池セパレーター。

#### 【0007】

【発明の実施の形態】以下、本発明の燃料電池セパレーター用成形材料（以下、単に「成形材料」という）及びこれを成形してなる燃料電池セパレーターについて詳細に説明する。本発明の成形材料は、熱硬化性樹脂、導電性を有する炭素系基材、及びジエン系ゴムを必須成分として含有し、ジエン系ゴムが熱硬化性樹脂との反応性官能基を有することを特徴とする。また、本発明の燃料電池セパレーターは、前記成形材料を成形してなるものである。まず、本発明の成形材料について説明する。

【0008】本発明の成形材料で用いられる熱硬化性樹脂としては特に限定されないが、例えば、フェノール樹脂、エポキシ樹脂、ポリエステル樹脂、ジアリルフタレート樹脂、ポリイミド樹脂などが挙げられ、これらを単独で使用してもよいし、必要に応じて2種類以上を併用してもよい。これらの中でも、フェノール樹脂またはエポキシ樹脂を用いた場合は、耐熱性、機械的強度、電気的安定性、コスト等種々の点において優れているとともに、ベースとなる樹脂を低分子量のものから適宜選択することができるなどの点で好ましいものである。

【0009】熱硬化性樹脂としてフェノール樹脂を用いる場合、その種類としては特に限定されないが、例えば、ノボラック型フェノール樹脂、レゾール型フェノール樹脂が挙げられる。これらを単独ないしは併用して用いることができる。これらの中でも、ヘキサメチレンテトラミン硬化のノボラック型フェノール樹脂は、硬化に伴う残留アンモニアが燃料電池の触媒である白金系プロトン交換触媒の触媒毒となることがあるため、主としてレゾール型フェノール樹脂を使用することが好ましい。また、レゾール型フェノール樹脂を用いる場合、その種類としては特に限定されないが、例えば、メチロール型レゾールフェノール樹脂、ジメチレンエーテル型レゾールフェノール樹脂などが挙げられる。これらの中でも、ジメチレンエーテル型レゾールフェノール樹脂を用いることが好ましい。ジメチレンエーテル型レゾールフェノール樹脂は、フェノール核結合官能基としてジメチレンエーテル結合を多く有しているため、より柔軟な成形品を得ることができる。これにより、成形性を向上させることができ、また、成形品であるセパレータを積層し締め付ける際の応力を緩和し、割れなどの発生を防ぐことができる。

【0010】フェノール樹脂を用いる場合、その分子量についても特に限定されないが、例えば、ジメチレンエーテル型レゾールフェノール樹脂の場合では、GPC測定による遊離フェノール除外フェノール換算数平均分子量が800～1200であることが好ましい。これにより、成形材料を成形する際に良好な成形性を得ることができる。数平均分子量が前記下限値を下回ると、成形時に硬化収縮によりヒケを生じやすくなることがあり、一方、前記上限値を超えると流動性が低下する傾向がみられ、いずれの場合も成形性や成形品の溝の加工精度に影響することがある。

【0011】また、熱硬化性樹脂としてエポキシ樹脂を用いる場合、その種類としては特に限定されないが、例えば、ビスフェノールA型エポキシ樹脂、オルソクレゾールノボラック型エポキシ樹脂、ピフェニル型エポキシ樹脂、脂環型エポキシ樹脂などを用いることができ、これらを単独または2種類以上を混合して用いてもよい。これらの中でも、オルソクレゾールノボラック型エポキシ樹脂が特に好ましい。これにより、熱時の機械的強度を向上でき、かつ、低コストにすることができる。また、これらのエポキシ樹脂のエポキシ当量や分子量なども特に限定されないが、例えばオルソクレゾールノボラック型エポキシ樹脂を用いた場合の数平均分子量は500～1000のものが好ましい。これにより、成形性と成形品の機械的強度のバランスを良好にすることができる。

【0012】本発明の成形材料には、成形品に導電性を付与するために導電性を有する炭素系基材（以下、単に「炭素系基材」という）を配合する。炭素系基材としては特に限定されないが、導電性の優れているものが好ましく用いられる。具体的にはグラファイト構造が成長したものであり、天然や人造の黒鉛がこれに該当する。天然に産出する鉱物としての黒鉛には、天然黒鉛と称される鱗片状の黒鉛と土壌黒鉛とがあるが、このうち天然黒鉛が導電性に優れている。また、人造黒鉛については、石炭系コークスを熱処理したものと石油系コークスを熱処理したものがあり、形状としては鱗状、針状、塊状、球状、凝集体などがあるが、いずれのものも、X線解析による格子定数精密法で求めるc軸(002)層面間距離( $d_{002}$ )が0.335～0.460nmの範囲にあって、真比重が2.04～2.34の範囲にあることが好ましい。

【0013】また、黒鉛以外の炭素系基材を併せて用いることもできる。黒鉛以外の炭素系基材としては特に限定されないが、例えば、炭素繊維やカーボンブラックなどが挙げられる。これらは非晶質カーボンを含んでいてもよい。炭素繊維やカーボンブラックは、成形材料中の樹脂相内に分散して導電助剤として機能すると共に、炭素繊維の場合はその形状により、曲げ強さや靱性などの機械的特性を改善する効果があり、これらを必要に応じ

て配合することができる。

【0014】本発明の成形材料には、熱硬化性樹脂との反応性官能基を有するジエン系ゴム（以下、「官能基含有ジエン系ゴム」という）を配合することを特徴とする。これにより、成形時に流動性を付与できる。また、ジエン系ゴムが有する弾力性、可撓性を成形品に付与することができ、成形品の靱性を向上させることができる。さらに、熱硬化性樹脂との官能基を含有していることにより、成形品の機械的強度や耐酸性を向上させることができる。本発明の成形材料に用いられる官能基含有ジエン系ゴムとしては特に限定されないが、反応性官能基を除いた部分の化合物が、ポリブタジエン、ポリイソブレン、ブタジエン-イソブレン共重合体、ブタジエン-スチレン共重合体、アクリロニトリル-ブタジエン共重合体であるものなどが挙げられ、また、これらが部分的に水素添加されたものも使用できる。これらを単独または2種類以上を混合して用いてもよい。これらの中でも、ポリブタジエン、アクリロニトリル-ブタジエンが特に好ましい。これにより、熱硬化性樹脂との相溶性、成形性を向上させることができる。前記官能基含有ジエン系ゴムの分子量としては特に限定されないが、例えばポリブタジエンを用いた場合では、数平均分子量で500～3000のものであることが好ましい。これにより、成形材料製造時の作業性、成形材料中への分散性、熱硬化性樹脂との反応性などを良好にすることができる。

【0015】本発明の成形材料に用いられる官能基含有ジエン系ゴムは、骨格となる前記化合物に、熱硬化性樹脂との反応性官能基が結合した構造を有するものである。前記反応性官能基としては特に限定されないが、エポキシ基、メチロール基、アミノ基、カルボキシル基、酸無水物基、メルカプト基などが挙げられる。これらは、用いられる熱硬化性樹脂の化学構造や、これに由来する反応性などにより選択し、目的とする成形材料および成形品の要求特性等を考慮の上選定すればよい。一例を挙げると、熱硬化性樹脂としてレゾール型フェノール樹脂を用いた場合は、レゾール型フェノール樹脂が有する水酸基との反応性に富むエポキシ基、メチロール基を有するものが好ましく用いられる。また、熱硬化性樹脂としてエポキシ樹脂を用いた場合は、耐熱性に優れる点でエポキシ基を有するものが好ましく用いられる。

【0016】官能基含有ジエン系ゴムが有する反応性官能基の数については特に限定されないが、一例を挙げると、熱硬化性樹脂としてレゾール型フェノール樹脂を用い、ジエン系ゴムとしてエポキシ基を有するポリブタジエンを用いた場合では、エポキシ当量として150～250のものをを用いることが好ましい。これにより、成形性、靱性を向上させることができる。また、熱硬化性樹脂としてビスフェノールA型エポキシ樹脂を用い、官能基含有ジエン系ゴムとしてエポキシ基および末端に水酸

基を有するポリブタジエンを用いた場合では、エポキシ当量として100～200のものをを用いることが好ましい。これにより、成形性、機械的強度を向上させることができる。これらは、各々の原材料の組合せ、あるいは後述する配合量等によってそれぞれ好適な範囲を有しているので、用いる原材料の種類や性状に合わせて適宜選択して決定することができる。

【0017】次に、熱硬化性樹脂と炭素系基材の配合量について説明する。本発明の成形材料には、特に限定されないが、成形材料全体100重量部に対して、熱硬化性樹脂6～22重量部、炭素系基材74～90重量部を配合することが好ましい。さらに好ましくはそれぞれ10～20重量部、79～88重量部である。両成分の配合量をかかるとする範囲内とすることによって、成形材料の成形性と成形品の電気的特性や機械的特性を良好なものとするすることができる。熱硬化性樹脂の配合量が前記下限値を下回るか、炭素系基材の配合量が前記上限値を超えると、成形時に十分な流動性が確保できず、精密な形状を成形することが難しくなることがある。これは樹脂量が相対的に少なく、黒鉛粒子間を充填するにはその体積が不十分であるためと考えられ、この結果成形品の機械的強度にも影響することがある。一方、熱硬化性樹脂の配合量が前記上限値を越えるか、炭素系基材の配合量が前記下限値を下回ると、成形品の導電性が低下し、実用に適した燃料電池セパレーターを得ることが難しくなる場合がある。これは樹脂体積が増えることで黒鉛粒子同士の凝集が起こるようになり、結果として絶縁体部分を生じて導電性を低下させるものと考えられる。このような樹脂相が多い系においては、前記の炭素繊維やカーボンブラックの併用もその効果が小さくなる。

【0018】また、官能基含有ジエン系ゴムの配合量についても特に限定されないが、成形材料全体100重量部に対して0.3～3重量部であることが好ましく、さらに好ましくは0.5～2重量部である。これにより、他の特性に影響を与えることなく、成形時の流動性と成形品の靱性を向上させることができる。官能基含有ジエン系ゴムの配合量が前記下限値未満であると、本発明の効果を十分に発現できなくなる場合があり、一方、前記上限値を越えて配合すると、機械的強度が低下することがある。

【0019】なお、本発明の成形材料には、これまで説明した原材料以外にも、本発明の目的および効果に反しない範囲内において、成形材料として一般的に用いられる硬化助剤、可塑剤、離型剤などを用いることができる。

【0020】本発明の成形材料は、通常の方法により製造することができる。すなわち、前記原材料を所定量配合し、リボンブレンダーやプラネタリミキサーなどを用いて予備混合した後、加熱ロールや二軸混練機を用いて熔融混練し、これをさらに造粒化するか、冷却後粉碎・

分級などの操作を経て成形材料とすることができる。

【0021】次に、本発明の燃料電池セパレーターについて説明する。本発明の燃料電池セパレーターは、本発明の成形材料を用いて、これを所定の条件で成形することにより得られる。本発明の成形材料を燃料電池セパレーターに成形する場合は、圧縮成形やトランスファー成形により成形する。圧縮成形を用いる場合は、成形品の形状に合わせて予備成形品を成形し、これを成形することで成形性を補助することもできる。圧縮成形による製造の一例を挙げると、圧力50～400kg/cm<sup>2</sup>、温度20～70℃、時間0.1～2分間で予備成形品を成形し、これをさらに圧力200～1500kg/cm<sup>2</sup>、温度150～200℃、時間1～30分間で成形することにより、燃料電池セパレーター成形品を得ることができる。

#### 【0022】

【実施例】以下、実施例により本発明を説明する。実施例における「%」は全て「重量%」を表す。

#### 【0023】[フェノール樹脂の製造] フェノール

(P)100kg、87%パラホルムアルデヒド(F)62kg(F/Pモル比1.70)、酢酸亜鉛0.5kgを還流コンデンサー攪拌機、加熱装置、真空脱水装置、スタティックミキサー付きレジン循環装置を備えた300リッター反応釜内に入れ、還流反応を3時間行った。この時点のフェノール反応率は92%であった。その後、脱水を行いながら115℃迄加熱し、更に115℃、真空度100Torrを1時間維持して反応を進めた後、冷却バット上に取り出し、遊離フェノール除外フェノール換算数平均分子量が800のレゾール型フェノール樹脂(固形)105kgを得た。

#### 【0024】[成形材料の作成]

##### (1) 実施例1

前記の方法で製造したレゾール型フェノール樹脂13.5%、人造黒鉛83%及びカーボンブラック2%をヘンシェルミキサーで攪拌しながら、官能基含有ジエン系ゴムAを1.5%添加・混合し、原料混合物を得た。この原料混合物を80℃の加熱ニーダーで10分間溶融混練した後取り出し、顆粒状に粉碎して成形材料を得た。

##### (2) 実施例2

官能基含有ジエン系ゴムAのかわりに官能基含有ジエン系ゴムBを使用した以外は、実施例1と同様の方法で行った。

##### (3) 実施例3

官能基含有ジエン系ゴムAのかわりに官能基含有ジエン系ゴムCを使用した以外は、実施例1と同様の方法で行った。

##### (4) 実施例4

クレゾールノボラック型エポキシ樹脂7.9%、ノボラック型フェノール樹脂5.1%、硬化促進剤として、イミダゾール化合物(2-メチル-4-メチルイミダゾー

ル)をエポキシ樹脂に対して1.0%、人造黒鉛83%及びカーボンブラック2%をヘンシェルミキサーで攪拌しながら、官能基含有ジエン系ゴムAを1.0%添加混合し、原料混合物を得た。この原料混合物を80℃の加熱ニーダーで10分間溶融混練した後取り出し、顆粒状に粉碎して成形材料を得た。

##### (5) 比較例1

実施例1で用いたレゾール型フェノール樹脂15%、人造黒鉛83%及びカーボンブラック2%をヘンシェルミキサーで混合して原料混合物を得た。この原料混合物を80℃の加熱ニーダーで10分間溶融混練した後取り出し、顆粒状に粉碎して成形材料を得た。

##### (6) 比較例2

官能基含有ジエン系ゴムAのかわりに官能基を含有しないジエン系ゴムDを使用した以外は、実施例1と同様の方法で行った。

##### (7) 比較例3

官能基含有ジエン系ゴムAのかわりに官能基を含有しないジエン系ゴムEを使用した以外は、実施例1と同様の方法で行った。

【0025】[導電性の評価] 実施例及び比較例で得られた成形材料を金型温度175℃、成形圧力200kg/cm<sup>2</sup>、成形時間5分間で圧縮成形して80×80×15mmの試料3、及び80×80×5mmの試料4を得た。これらの試料を用いて、図1に示す方法で貫通方向の抵抗を測定し、導電性の評価を行った。即ち、厚さの異なる2枚の試料3、4を組み合わせ、カーボンペーパー2を介して電極1にセットし、成形体の厚みが異なった状態での抵抗値より、貫通方向の固有抵抗を求めた。比較データとしてJIS K 7194により体積固有抵抗率も測定した。

【0026】[セパレーター用素材としての諸特性評価] 実施例及び比較例で得られた成形材料を金型温度175℃、成形圧力200kg/cm<sup>2</sup>、成形時間5分間で圧縮成形して300×300×2mmの大きさの成形品を得た。これよりテストピースを切り出し、185℃で3時間の後硬化処理後、評価を行った。

(1) 曲げ強さ、曲げ弾性率、曲げ歪み量: JIS K 7203により測定した。

(2) 耐酸性: pH=2の80℃硫酸中に500hr浸漬後の曲げ強さの保持率を測定した。

#### 【0027】[成形性の評価]

(1) モノホール流動性: JIS K 6911により測定した。

(2) 溝深さ精度: 実施例及び比較例で得られた成形材料を用い、燃料電池セパレーター相当に幅1.0mm、深さ0.5mm、長さ160mmの溝を2.0mmピッチで49本流路加工した成形品を成形して評価した。成形品は、成形機として上滝社製800トンプレスを用い、金型温度175℃、成形圧力800kg/cm<sup>2</sup>、

成形時間2分間で圧縮成形により成形した。成形品の測定対象溝は、4本目～(この間7本ピッチ)～46本目(計7本)とし、各々について、長さ方向の中央部と両端部から10mm内側の部分の計3ヶ所を測定ポイントとして、 $7 \times 3 = 21$ 箇所を測定した。測定方法は、溝の幅方向中央部と隣接する平坦部の同中央部との差を溝の深さとし、溝深さ精度は下記の式により求めた。測定\*

\*機器は、OLYMPUS STM6-LM 測長顕微鏡を用いた。

$$\text{溝深さ精度} = (\sum_{i=1}^{i=21} (d_i - \text{dav})^2)^{0.5}$$

dav: 21箇所の溝深さの平均値

d<sub>i</sub>: i番めでの溝深さ

【0028】

【表1】

		実施例1	実施例2	実施例3	実施例4	比較例1	比較例2	比較例3
成形材料の配合	レゾール型フェノール樹脂	13.5	13.5	13.5		15.0	13.5	13.5
	クレゾールノボラック型エポキシ樹脂				7.9			
	ノボラック型フェノール樹脂				5.1			
	イミダゾール化合物				0.08			
	人造黒鉛	83.0	83.0	83.0	83.0	83.0	83.0	83.0
	カーボンブラック	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0	2.0
	官能基含有ジエン系ゴムA	1.5			2.0			
	官能基含有ジエン系ゴムB		1.5					
	官能基含有ジエン系ゴムC			1.5				
	官能基を含有しないジエン系ゴムD					1.5		
	官能基を含有しないジエン系ゴムE							1.5
成形品の評価結果	貫通方向抵抗率(mΩ・cm)	22	25	29	22	25	30	33
	体積固有抵抗率(面抵抗)(Ω)	10	11	12	9	14	18	19
	曲げ弾性率(MPa)	10000	12000	11000	12000	10000	12000	11000
	曲げ変形率(%)	0.6	0.6	0.6	0.6	0.3	0.5	0.4
	曲げ強さ(MPa)	63	65	61	61	64	52	51
	曲げ強さ保持率(%)	95	90	94	90	92	68	70
	モノホール流動性	F-5	F-5	F-5	F-5	F-4	F-6	F-6
	溝深さ精度(μm)	32	40	35	30	96	80	55

【0029】【表の注】

(1) オルソクレゾールノボラック型エポキシ樹脂: 日本化薬株式会社製、EOCN-102S-70 (数平均分子量725)

(2) ノボラック型フェノール樹脂: 住友ベークライト株式会社製、PR-51714 (数平均分子量614)

(3) 人造黒鉛: 日本黒鉛工業株式会社製、PAG-120

(4) カーボンブラック: 三菱化学株式会社製、ケッチンブラックEC

(5) 官能基含有ジエン系ゴムA: 日本石油化学株式会社製、E-1000-8/エポキシ基を有するポリブタジエン (数平均分子量1000、エポキシ当量226)

(6) 官能基含有ジエン系ゴムB: 日本石油化学株式会社製、M-1000-80/酸無水物基を有するポリブタジエン (数平均分子量1000)

(7) 官能基含有ジエン系ゴムC: ダイセル化学工業株式会社製、PB-3600/エポキシ基を有するポリブタジエン (数平均分子量3000、エポキシ当量200)

(8) 官能基を含有しないジエン系ゴムD: JSR株式会社製、JSR N280/ブタジエン-アクリロニトリル共重合体 (結合アクリロニトリル量32%)

(9) 官能基を含有しないジエン系ゴムE: 日本石油化学株式会社製、B-1000/ポリブタジエン (数平均分子量1000)

【0030】表1の結果から、実施例1～3は熱硬化性樹脂としてフェノール樹脂またはエポキシ樹脂、炭素系

基材として黒鉛、及び官能基含有ジエン系ゴムを、それぞれ特定の割合で配合した成形材料であり、この成形品の電気的特性、機械的特性、耐酸性、及び溝深さ精度はいずれも良好なものとなった。一方、比較例1では官能基含有ジエン系ゴムを用いなかったところ、靱性、溝深さ精度が低下した。また、比較例2、3では官能基を含有しないジエン系ゴムを使用した、機械的強度、耐酸性、溝深さ精度が低下し、電気的特性においても低下が認められた。

【0031】

【発明の効果】本発明は、熱硬化性樹脂、炭素系基材、及び官能基含有ジエン系ゴムを必須成分として含有し、前記ジエン系ゴムが前記熱硬化性樹脂との反応性官能基を有することを特徴とする燃料電池セパレーター用成形材料である。本発明の成形材料の成形品は、成形性が良好であり、成形品の機械的特性、電気的特性に優れ、燃料電池セパレーター用として好適に使用できるものである。

【図面の簡単な説明】

【図1】 本発明の実施例における貫通方向抵抗率の測定法を示す概略図

【符号の説明】

- 1 電極
- 2 カーボンペーパー
- 3 本発明の樹脂組成物の成形物 (厚さ15mm)
- 4 本発明の樹脂組成物の成形物 (厚さ5mm)
- 5 定電流装置
- 6 電圧計

【図1】

